

# 交換結合を利用したCoCrPt-酸化物グラニューラ膜とCo/Pd多層膜との積層型垂直磁気記録媒体に関する研究

著者	THAM KIM KONG
号	55
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工博第4386号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/61866">http://hdl.handle.net/10097/61866</a>

	タム キム コング
氏 名	THAM KIM KONG
授 与 学 位	博士 (工学)
学位授与年月日	平成22年9月 8 日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 電子工学専攻
学 位 論 文 題 目	交換結合を利用した CoCrPt-酸化物グラニューラ膜と Co/Pd 多層膜との積層型垂直磁気記録媒体に関する研究
指 導 教 員	東北大学教授 高橋 研
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 高橋 研    東北大学教授 佐橋 政司 東北大学教授 村岡 裕明    東北大学准教授 齊藤 伸

## 論文内容要旨

交換結合を利用した CoCrPt-酸化物グラニューラ膜と Co/Pd 多層膜との積層型垂直磁気記録媒体に関する研究

タム・キム・コング

A study of exchanged coupled CoCrPt-oxide granular layer and Co/Pd multilayer  
for stacked perpendicular recording media

Tham Kim Kong

In order to clarify the design principle for stacked perpendicular recording media with CoCrPt-oxide granular layer which is promising for breaking the trilemma problem, microstructure and magnetic properties for stacked media with cap layer directly deposited on granular layer were investigated. Furthermore, microstructure, magnetic properties and read-write properties for stacked media with spacer layer deposited in between granular and cap layer were also studied. As results, it is found that (1) the non-uniform boundary width of the granular layer leads to the non-uniform initial boundary height of cap layer. The non-uniform structure of cap layer generates the distribution of inter-granular exchange coupling which prevent stacked media from breaking the trilemma problem, (2) the quantitative value of inter-granular exchange coupling can be evaluated by setting the stable condition for magnetic cluster domain in AC-erased stacked media, (3) the quantitative value of inter-layer ferromagnetic coupling between granular and cap layers can be evaluated by adding reference layer onto the cap layer, (4) the reduction of distribution for inter-granular exchange coupling can be achieved by inserting Pd spacer layer in between granular layer and cap layer. It is concluded that stacked perpendicular recording media can break the trilemma problem by reducing the average and distribution of inter-granular exchange coupling.

### 1. はじめに

グラニューラ型垂直磁気記録媒体の高記録密度化において、媒体の出力と媒体ノイズとの比 ( $SN$ )、を向上するために磁性結晶粒径の微細化が必須である。粒径の微細化が続くと同じ磁気異方性エネルギー ( $K_u$ ) では結晶類一つのエネルギー  $vK_u$  が小さくなり、磁化反転ポテンシャルエネルギーが低下してしまい、熱緩和により磁化反転しやすくなってしまふ。熱エネルギーに打ち勝つため、 $K_u$  の高い磁性材料の使用が必要になる。一方、現行の記録ヘッドでは飽和磁化 ( $M_s$ ) が最も大きい FeCo 系合金が使用され、すでに記録の限界にきていると言える。また、これ以上  $K_u$  を高くしても、記録が不可能になる。このように、グラニューラ型垂直磁気記録媒体の高記録密度化において Trilemma 課題の解決が問題となる。

これまで Trilemma 課題解決するためには、主にパター

ン媒体、Exchange Coupled Composite (ECC) 媒体、Coupled Granular Continuous (CGC) [1] 媒体などが提案されてきた。この媒体においては層間・粒間の磁気的交換結合が重要な鍵を握っている。本研究では、従来の媒体作製技術が適用可能な CGC 媒体に着目している。

CGC 媒体 (以降積層型媒体) は 2000 年に IBM と東北大学通研により提案された媒体であり、当初は熱安定性及び  $SN$  向上との両立を意図して提案されたものであった。この媒体の特性変化のメカニズムを調べると、 $SN$  および熱安定性の向上の他に、グラニューラ膜上にキャップ層を積層することにより、媒体の飽和磁界が低減され、記録容易性が向上できることが明らかになった[2]。

当初の積層型媒体の設計としては、粒間交換結合のないグラニューラ膜の上に粒間交換結合の強いキャップ層を積層することにより、キャップ層の膜厚を調整すれば、グラニューラ膜の粒間交換結合がキャップ層を介して制御する



ことが可能となる。このような積層型媒体を具現化するためには、粒間交換結合が完全に抑制された理想的なグラニュー膜材料の実現が肝要である。

当初積層型媒体が提案されたときには、Cr 偏析型 CoCrPt 系合金がグラニュー膜として用いられたが、十分に粒間交換結合が低減されていない。その後、及川ら[3]は従来の CoCrPt 系合金に酸化物を混合させた磁性材料を垂直媒体として用いた。CoCrPt 合金との結合エネルギーが低い酸化物は、磁性層の結晶粒界部に偏析しやすく、面内方向の粒間交換結合を大きく低減できた。しかし、結晶粒界への酸化物の偏析は面内方向の広範囲および膜厚方向において均一に制御できるかどうかは不明である。また、面内方向の膜質が不均一な CoCrPt-酸化物(金属結晶粒部及び酸化物粒界部)を積層型媒体のグラニュー膜材料として用いる際、その上に積層するキャップ層がどのように成長するのもまだ不明である。さらに、媒体における粒間交換結合の制御性についても明らかになっていない。

そこで本研究では、CoCrPt-酸化物グラニュー膜を用いる積層型媒体の構造解析を行い、グラニュー膜上にキャップ層を直接積層した積層型媒体及びスペーサ層を導入した媒体における磁気特性を評価し、磁気特性を決定する物理要因を解明し、その結果から CoCrPt-酸化物をグラニュー膜として用いた積層型垂直磁気記録媒体の設計指針を提言することを目的とした。

## 2. 実験方法

実験に使用した媒体は DC マグネトロンスパッタ装置を用いて室温で作製した。

表面粗さ  $Ra < 0.3 \text{ nm}$  平滑なガラス基板の上に、Ta (5 nm)/ Pt (6 nm)/ Ru (20 nm)/ グラニュー膜/ キャップ層/ C (7 nm) を順次形成した。ここで、グラニュー膜には  $\text{Co}_{74}\text{Cr}_{10}\text{Pt}_{16}\text{-SiO}_2$  8~14 mol% (4~20 nm)、キャップ層には  $[\text{Co}(0.6)/\text{Pd}(1.1)]_n$  (n: 0~9) を用いた。層間交換結合を制御するために、グラニュー膜とキャップ層との間に Pd スペーサ (0~3.1 nm) を積層した。また、記録再生特性の評価のために、ガラス基板と Ta の間に  $\text{CoTaZr}$  (50 nm x 2) 軟磁性層を積層した。

媒体の磁気特性には振動試料型磁力計(VSM)、極 Kerr 装置、高感度トルク磁力計により測定され、媒体の微細構造には透過電子顕微鏡(TEM)と X 線回折装置により解析し、磁区構造には磁気力顕微鏡 (MFM)により観察し、記録再生特性には 100 Gbit/in<sup>2</sup> 対応 TMR ヘッドを搭載した RW Tester により測定された。

## 3. CoCrPt-酸化物グラニュー膜を用いた積層型媒体の構造

図 1 には、粒間交換結合と平均粒界幅と平均粒径粒径との相間を示している。この図から、 $\text{SiO}_2$  添加量 12 mol%

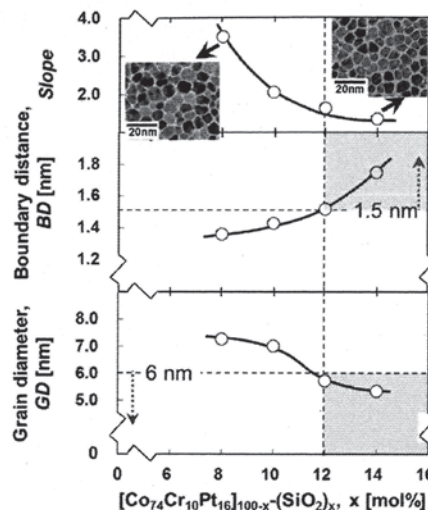


図 1 粒間交換結合と平均粒界幅と平均粒径粒径との相間

以上にすると、平均結晶粒径 6 nm 以下かつ粒界幅が 1.5 nm 以上の孤立化媒体が実現できること示している。

図 2 には、積層型媒体の模式図を示している。この図からわかるように、キャップ層がグラニュー膜中の金属結晶部分を初期核として成長しているため、グラニュー膜の組織不均一性がキャップ層の不均一性をもたらすことが分かった。

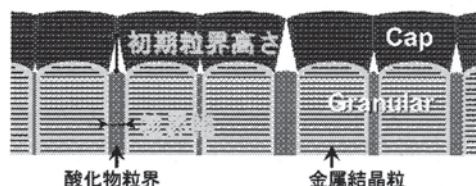


図 2 積層型媒体の模式図

以上述べたように、キャップ層の粒界構造はグラニュー膜の構造により決定されるため、グラニュー膜の粒界幅の不均一性により、キャップ層の初期粒界高さの不均一性が発生する。

## 4. CoCrPt-酸化物グラニュー膜を用いた直接積層型媒体の磁気特性

ここでは、積層型媒体に大きく影響するキャップ層での粒間交換結合の定量評価方法を提案する。この方法では交流消磁した磁区構造に着目した。

図 3 には、磁気力顕微鏡で観察した積層型媒体の磁区構造を示す。評価は無磁場状態で行われた。キャップ層膜厚を厚くしていくと、膜厚 5.1 nm のところで、磁区構造が大きく変化する。ここで膜厚 5.1 nm を臨界膜厚として定義した。膜厚 5.1 nm 以下において、一部がクラスタ(複数の結晶粒が磁的に結合)磁区を形成されているが、隣接しているクラスタの磁化は同方向でないものが存在している。この状態を磁気クラスタ磁区と呼ぶ。一方、膜厚が 5.1 nm 以上では、隣接しているクラスタ磁化が必ず同

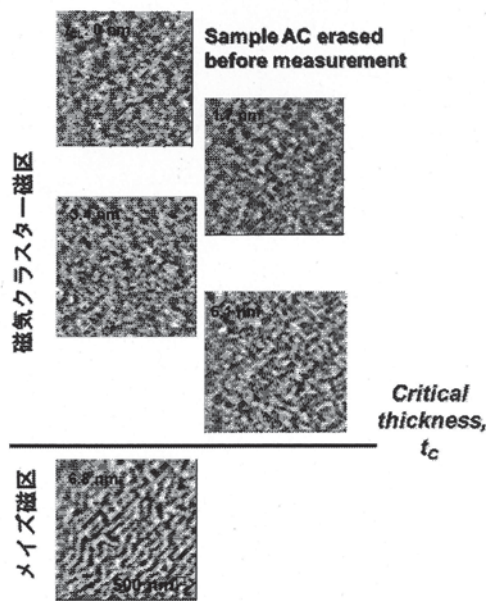


図3 磁気力顕微鏡で観察した積層型媒体の磁区構造方向に向いている。この状態をメイズ磁区と呼ぶ。

図4には、積層型媒体の磁区構造解析用の磁区モデルを示す。実媒体をモデル化するために、一つの結晶粒が六つの結晶粒に囲まれると仮定している。図中には磁化状態および粒間交換結合を分かりやすくするため、手前の部分を取り除いた形で表示した。また、積層型媒体では磁化反転がコヒーレントに起こるので、このモデルは一つのグラニューラ膜とキャップ層から形成される結晶粒を一つのコラムに近似することが可能である。モデルにおいて下記の表記を用いた。

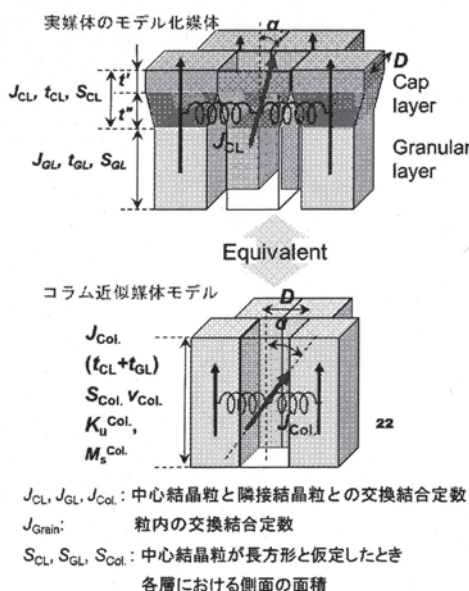


図4 積層型媒体の磁区構造解析用の磁区モデル

中心結晶粒におけるエネルギー  $E$  は下記の仮定において式(1)で表すことができる。

- ① 隣接結晶粒の磁化を容易軸上向きに固定

- ② 反磁界と印加磁場: 0 (交流消磁状態)

$$E = v_{Col} K_u^{Col} \sin^2 \alpha - J_{Col} S_{Col} \cos \alpha \quad (1)$$

このエネルギー  $E$  を角度  $\alpha$  に対してプロットすると、Fig. 5 に示すことができる。図中にはメイズ磁区と磁気クラスタ磁区になるエネルギーを示している。この図から、磁気クラスタ磁区が安定に形成されるための障壁エネルギーが  $\Delta E$  となる、 $\Delta E$  のエネルギーは下記式(2)に表せる。故に、 $\Delta E > 0$  : 磁気クラスタ磁区が安定に形成される条件となる。

$$\Delta E = \frac{(2K_u^{Col} v_{Col} - J_{Col} S_{Col})^2}{4K_u^{Col} v_{Col}} \quad (2)$$

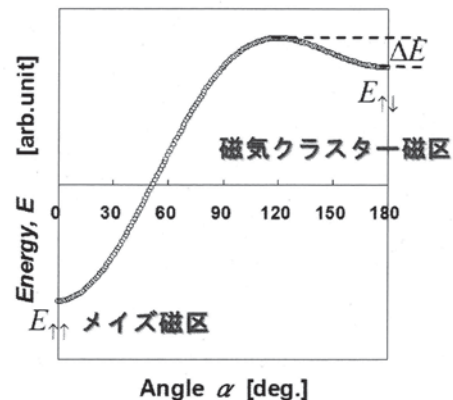


図5 エネルギー  $E$  の角度  $\alpha$  依存性

下記の実際媒体の諸特性を安定条件  $\Delta E > 0$  に代入すると、粒間交換結合が算出できる。本研究で用いた媒体の諸特性:  $t_{CL}$ : 5.1 nm,  $t_{GL}$ : 16 nm,  $K_u^{Col}$ :  $4.9 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup>,  $J$  inside grain [4]: 100 erg/cm<sup>3</sup> を用いると、コラム近似した媒体における粒間交換結合  $J_{CL} = 2.5$  erg/cm<sup>3</sup>、実媒体をモデル化媒体における粒間交換結合  $J_{CL} = 10.3$  erg/cm<sup>3</sup> と定量することができた。

## 5. スペーサ層を導入した CoCrPt-酸化物グラニューラ膜積層型媒体の磁気特性

組織不均質性にともなう層間の交換結合の分散を抑制するため、グラニューラ層とキャップ層との間に Pd スペーサ層を導入した。ここで、参照膜を設けたによる層間交換結合の定量評価法を提案した。

図6には、実際媒体に参照膜を積層したときの層間交換結合の Pd スペーサ層膜厚依存性を示す。Pd スペーサ層の膜厚が 2.1 nm までには、VSM で測定した磁曲線で示したように参照膜が先に磁化反転を起こす。このとき参照膜は反強磁性結合により磁化反転を起こした。Pd スペーサ層膜厚の膜厚が 2.2 nm 以上においては、強磁性結合が弱くなり、キャップ層が先に磁化反転を起こす。ここでキャップ層は参照膜の反強磁性結合及びグラニューラ膜からの強磁性結合の影響を受けて磁化反転を起こす。そのため、このとき求めた  $J$  は強磁性結合と反強磁性結合の  $J$  から構



成される。Pd スペース層膜厚の膜厚が 2.2 nm 以上の  $J$  を Pd スペース層膜厚の膜厚が 2.1 nm 以下の  $J$  との差が強磁性結合  $J_F$  になる。

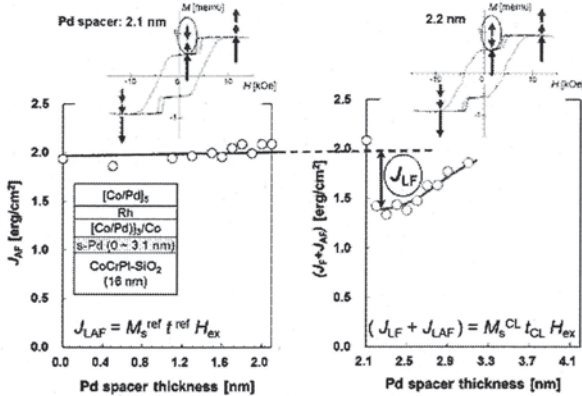


図6 実際媒体に参照膜を積層したときの層間交換結合の Pd スペース層膜厚依存性

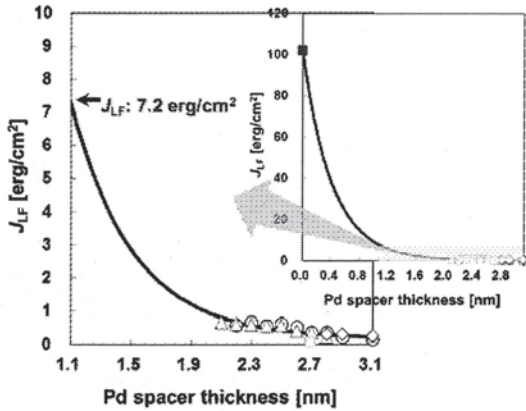


図7 強磁性結合  $J_F$  の Pd スペース層膜厚依存性

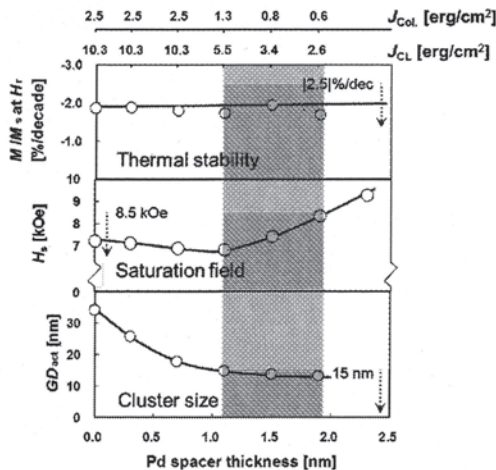


図8 Pd スペース層を挿入した積層型媒体における磁気特性の観点からの Trilemma 検証

図7には、強磁性結合  $J_F$  の Pd スペース層膜厚依存性を示す。ここで、 $J_F$  が Pd スペース層の膜厚に対して指数関数で減衰すると仮定しフィッティングすると、一例として Pd スペース層膜 1.1 nm のところでは 7.2 erg/cm<sup>2</sup>

となる。また、Pd スペース層膜が 0 においては、文献 [4] で求めたもの、100 erg/cm<sup>2</sup>を用いた。

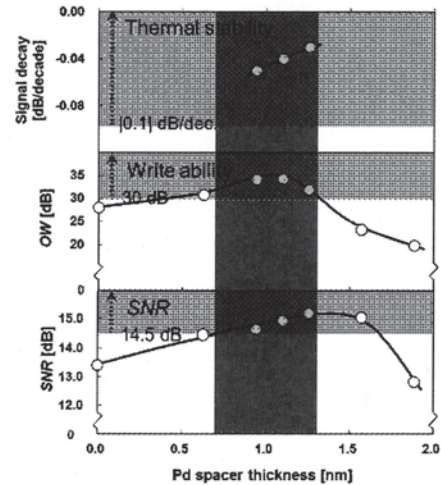
図8には、Pd スペース層を挿入した積層型媒体における磁気特性の観点からの Trilemma 検証を示す。この図から高 SN、熱安定性、記録容易性を満たす条件として Pd スペース層の膜厚が 1.1 nm から 1.9 nm 存在する。

このように、Pd スペース層を導入することにより粒間交換結合の平均値及び分散が抑制でき、Trilemma 課題解決が可能になる。

## 6. 交換結合の調整による相反課題の解決と記録再生特性

図9には、Pd スペース層を挿入した積層型媒体における記録再生特性の観点からの Trilemma 検証を示す。この図から高 SN、熱安定性、記録容易性を満たす条件として Pd スペース層の膜厚が 1.1 nm から 1.3 nm 存在する。

図9 Pd スペース層を挿入した積層型媒体における記録再



生特性の観点からの Trilemma 検証

## 7. 結論

キャップ層がグラニューラ膜中の金属結晶を初期核として成長し始めるため、グラニューラ膜の組織不均一性がキャップ層の不均一性をもたらした。この組織の不均一性により粒間交換結合の分散が発生した。グラニューラ膜とキャップ層との間に Pd スペース層を積層することにより粒間交換結合の平均値と分散が抑制でき、Trilemma 課題解決できることを示した。この研究で層間・粒間交換結合の定量化方法を発案し、初めて定量化を行った。

## 文献

- [1] Y. Sonobe et. al, *IEEE Trans. Magn.*, **37**, 1667 (2001).
- [2] Y. Sonobe, K. K. Tham, et. al, *J. Magn. Magn. Mater.*, **303**, 292 (2006).
- [3] T. Oikawa et. al, *IEEE Trans. Magn.*, **38**, 1976 (2002).
- [4] K. Ounadjela et. al, *Phys. Rev. B*, **45**, 7768 (1992).

# 論文審査結果の要旨

垂直磁気記録媒体の高記録密度化のためには SN 比、熱安定性、記録容易性の向上が求められる。著者は、グラニューラ層とキャップ層とから構成される積層型媒体に着目し、CoCrPt-酸化物膜をグラニューラ層材料に、Co/Pd 多層膜をキャップ層材料に選択し、キャップ層を介してグラニューラ層の粒間の磁氣的結合を調整することで、前記の物理的に相反する三つの課題を両立させることに成功した。また、キャップ層における粒間交換結合およびグラニューラ層とキャップ層との層間の交換結合の定量評価法を発案し、その結果を基に積層型媒体の設計指針を提案した。本論文はそれらの研究成果をまとめたもので、全文 7 章よりなる。

第 1 章は序論であり、本研究の背景および目的を述べている。

第 2 章では、本研究で用いた試料の作製方法、構造・磁気特性の評価解析方法、記録再生特性評価法に関して記述している。

第 3 章では、CoCrPt-酸化物グラニューラ層上に積層されたキャップ層の成長様式を解明している。キャップ層の各結晶粒は、グラニューラ層の酸化物粒界直上には成長せず金属結晶粒部から成長することを明らかにした。キャップ層の連続化膜厚はグラニューラ層の非磁性粒界幅に依存し、場所により異なることを実験的に明らかにした。これは実用積層型媒体の組織不均質性を定量評価した点で有用な知見である。

第 4 章では、CoCrPt-酸化物グラニューラ層上に直接キャップ層を積層した媒体のキャップ層における粒間交換結合の評価法を提案している。交流磁界で消磁した媒体の磁区構造の観察・解析結果から粒間交換結合が評価できることを示した。その結果、キャップ層の粒間交換結合は  $10.3 \text{ erg/cm}^2$  であることが見積もられ、この値は  $2.5 \text{ erg/cm}^2$  程度のグラニューラ媒体コラム間の平均的な粒間交換結合に相当することを明らかにした。これは上記の相反課題解決上極めて重要な知見である。

第 5 章では、組織不均質性による層間交換結合の分散を抑制するため、グラニューラ層とキャップ層との間に Pd スペーサ層を導入した積層型媒体の磁気特性について議論している。キャップ層の上に反強磁性的に結合させた参照層を設け、その磁化反転過程を詳細に計測することにより、キャップ層とグラニューラ層との層間の交換結合を見積もる手法を提案した。 $1.1 \text{ nm}$  のスペーサ層厚によりキャップ層とグラニューラ層間の交換結合定数を  $7.2 \text{ erg/cm}^2$  に弱めた媒体においては、媒体コラム間の平均的な粒間交換結合が  $1.3 \text{ erg/cm}^2$  になり、その分散が  $0.3 \text{ erg/cm}^2$  に抑制された媒体が実現され、相反課題の解決が図られることを示した。

第 6 章では、Pd スペーサ層を導入した積層型媒体について記録再生特性の評価を行った結果、上記の相反課題の全てを解決できる積層型媒体を開発できることを検証した。

第 7 章は結論である。

以上要するに本論文は、垂直磁気記録媒体の高記録密度化を目的として、SN 比、熱安定性、記録容易性の向上を両立させるための積層型媒体の粒間および層間の磁氣的交換結合の制御指針を提案し、かつ実験的に検証したものであり、磁気記録工学及び電子工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。